

C-2

## アニール処理における最終降温速度変化に対する $L1_0$ -FePt 薄膜の形成結晶配向軸変化

### Effect of final cooling rate on the crystallographic orientation of $L1_0$ -FePt thin films during annealing

○大家幸太<sup>1</sup>, 吉川大貴<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>

\*Kouta Daike<sup>1</sup>, Hiroki Yoshikawa<sup>2</sup>, Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

Abstract: In general, to fabricate  $L1_0$ -ordered alloys, it is necessary to deposit FePt thin films and perform high temperature annealing over 600°C. We hypothesized that after elements are sufficiently mixed during the heat treatment process, the cooling process could be utilized to induce preferred crystal orientations. Previously, we discovered that the preferred orientation axis changes threshold-like depending on cooling rates during the cooling process. In this study, annealing experiments varying the cooling rate during the cooling process revealed that maintaining the cooling rate is crucial even below 450 °C.

#### 1. 背景

高い磁気異方性材料は、磁気記録媒体や TMR などの高感度磁気センサーなどの多くの応用に必要とされる。応用に合わせ多くの要件が存在するが、高い磁気異方性の発現、磁化容易軸、形状の制御が大きく求められる。その中で、高い磁気異方性かつ酸化耐性も強い  $L1_0$ -FePt は、現行かつ次世代高密度磁気記録媒体として注目されている。 $L1_0$ -FePt は、一般的に成膜後 600 °C 以上の熱処理により作製可能だが、熱処理中の複数の物理現象が相互的に起こるため、高い磁気異方性の発現や磁化容易軸の制御は未だ困難を極める<sup>[1]</sup>。これまでに、十分加熱をした後の降温過程温度低下速度を緩やかにすることが  $L1_0$ -FePt (001) の促進に有効である事を明らかにし、多層膜試料において温度低下速度操作により優先配向がしきい値的に変化をすることを明らかにしている<sup>[2], [3]</sup>。本検討では、降温過程のどの温度範囲において結晶配向に大きく影響を与えるかを明らかにすることを目的に、降温過程の温度低下速度を変化させたアニールを行った。

#### 2. 実験方法

Si 基板を大気中にて 最高温度 1000 °C、保温時間 20 時間の加熱を行い、約 300 nm の熱酸化 Si を作製した。その後 DC マグネトロンスパッタリング法により熱酸化 Si 基板上に Fe/Pt 多層膜 [Fe (1.09 nm) / Pt (1.41 nm) = Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub>] × 6 cycle (総膜厚 15 nm) を積層した。この多層膜に対し到達真空度 ≤ 2.0 × 10<sup>-6</sup> Pa の雰囲気下で赤外線ランプ加熱により、昇温速度 200 °C/min.、到達温度 700 °C、保温時間 240 min. を経た後、200, 450, 700 °C の異なる温度まで温度低下速度 -1 °C/min 持続させた (Fig.1)。その後の降温は自然降温 (約 -40 °C/min) とした。熱処理後の試料に対し、結晶配向評価を膜面垂直方向に対しての X 線回折で、表面形状を走査型電子顕微鏡 (SEM) で評価を行った。

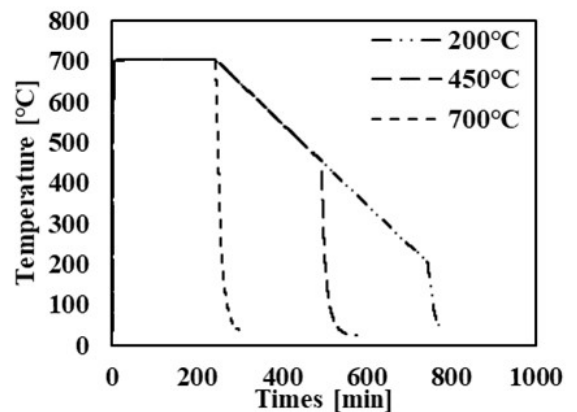


Fig.1 Annealing temperature profile of the Fe/Pt multilayer samples

#### 3. X 線回折による結晶構造評価

膜面垂直方向の  $\theta$ - $2\theta$  の X 線回折の結果から、熱処理前の試料では  $L1_0$  規則化しておらず、熱処理後の全ての試料で  $L1_0$  規則化が進行している事を確認した。700 °C で自然降温した試料では、 $L1_0$ -FePt (111) 優先配向し、200 °C で自然降温した試料では、 $L1_0$ -FePt (001) 優先配向することを確認した。450 °C で自然降温した試料では、 $L1_0$ -FePt (001), (111) のピークが同程度確認された。また、200 °C で自然降温させた試料が最も積分強度が大きく規則化が促進し、700 °C で自然降温させた試料は積分強度が小さく、一番規則化が進行していない事が確認出来る。これらのことから、 $L1_0$ -FePt (001) の促進には、200 °C 付近まで温度低下速度 -1 °C/min を持続させる必要があることを明らかにした。

1 : 日大理工・院 (前)・電子 2 : 日大理工・教員・電子

#### 4. SEM による表面形状評価

SEM による表面形状の結果から、熱処理前では平坦かつ全域に Fe, Pt が連続的に存在する表面形状を有し、熱処理後試料は、それぞれの温度条件に対し特徴の異なる表面形状が確認された。熱処理後の表面形状は、概ね Fe, Pt が存在する表面形状を有する連続膜であるが、一部 Fe, Pt が堆積していない箇所が見られた。この箇所を欠損箇所と定義する。700 °C で自然降温させた試料では、欠損箇所の面積が数  $\mu\text{m}$  の大きさで存在しているのに対し、200 °C で自然降温させた試料では数 100 nm の面積で存在する。これまでに、降温過程に引張応力が存在し、温度低下速度が速い領域において強い引張応力が存在することを示唆する結果を報告している<sup>[4]</sup>。本対象試料においても、欠損箇所が大きく現れている 700 °C で自然降温させた試料の方が応力緩和することが考えられ、大きな引張応力の関係を示唆する。また、450 °C で自然降温させた試料では、700, 200 °C で自然降温させた試料で確認されたような数  $\mu\text{m}$  と数 100 nm の欠損箇所が混在している表面形状が確認された。このことから、450 °C で自然降温させた条件では、温度低下速度 -40, -1 °C/min で確認された特徴を有する表面形状となる熱処理条件である事が明らかとなった。加えて、欠損箇所の面積から 700 °C で自然降温させた試料ほどではないが、数  $\mu\text{m}$  の欠損箇所を誘発するほどの引張応力が生じていることが考えられる。

#### 5. 結晶構造と表面形状の相関・考察

これまでに、総膜厚 10 nm の Fe/Pt 多層膜に対し、同一の熱処理条件で温度低下速度操作をした所、優先配向に対応して大きく表面形態が異なることを明らかにし、その要因が熱応力の関係である事を示唆することを報告している<sup>[4]</sup>。本検討試料において、 $L1_0$ -FePt(111) 優先配向した 700 °C で自然降温させた試料と  $L1_0$ -FePt(001) 優先配向した 200 °C で自然降温させた試料で、自然降温にさせた温度が高い試料の方が強い引張応力の存在を示す表面形状が得られている。そのため、総膜厚 15 nm の本対象試料でも同様に優先配向と表面形状に相関が存在し、優先配向変化の一要因として熱応力の関係が示唆される。450 °C で自然降温させた試料では、 $L1_0$ -FePt(111), (001) 結晶が同程度存在し、表面形状も (111) 優先配向した 700 °C で自然降温させた試料と (001) 優先配向した 200 °C で自然降温させた試料で確認出来る表面形状を有するため、配向性と表面形状が対応した関係が確認できる。

一般的に一度分離・微粒子化した後、連続膜形状に変化する事は考えにくく、特に原子拡散が起こりにくくなる降温過程では一度分離・微粒子化した後連続膜形状に変化する事はないに等しい。また、大きな欠損箇所の存在は強い引張応力の関係が示唆され、200 °C まで温度低下速度 -1 °C/min を持続させた条件では小さな欠損箇所のみ確認できるため、強い引張応力は発生していない。そのため、降温過程の 450 °C 以下で自然降温に変化させた試料で観察された大きな欠損箇所は、自然降温の温度低下速度領域で発生し、応力緩和が起きていることが考えられる。これらのことから、450 °C 以下まで熱応力の影響が最終構造に影響を与えている可能性が考えられ、温度低下速度操作が引張応力の大きさを操作する重要な条件である可能性が示された。

#### 6. まとめ

本検討は、降温過程のどの温度範囲で結晶配向が変化するかを明らかにするために、昇温速度 200 °C/min、到達温度 700 °C、保温時間 240 min での同一条件で加熱をした後、温度低下速度 -1 °C/min で降温中、温度低下速度を急峻に切り替える温度を 700, 450, 200 °C と変化させた熱処理を行った。結晶配向評価から、450 °C で自然降温した試料において、 $L1_0$ -FePt(001), (111) のピークが同程度存在する薄膜であることが確認され、 $L1_0$ -FePt(001) 優先配向薄膜の形成には、450 °C 以下まで温度低下速度 -1 °C/min を持続することが重要であることを明らかにした。これらのことから、降温過程に結晶配向が変化することを示した。

#### 7. 参考文献

- [1] 高橋有紀子, 日本物理学会誌, Vol.75, No.12, 2020
- [2] 大家幸太 他, IEE-MAG, MAG24088, 2024
- [3] K. Daike, et al., ICAUMS, 22aPS-9, 2025
- [4] 大家幸太 他, 第 49 回日本磁気学会学術講演概要集, 18pC-1, 2025